不規則系のPhonon Spectraの計算 : Taylorの論文に対するコメント

中村, 充伸

不規則系の Phonon Spectra の計算

— Taylor の論文に対するコメント —

京大理　　中　村　充　伸

（１月２２日受理）

§１　１散乱子近似と高次の近似

不規則系のうちで，結晶格子の幾何学的な配列は規則的で，格子点にくる原子の性質が異る場合を取り扱う方法として，最近，C．P．A．(Coherent Potential Approximation)[1] という方法が注目をあびている。この近似は１散乱子近似であり，ハミルトニアンを Wannier 型波動関数で展開して，

$$\mathcal{H} = \sum_{n} \epsilon_n a_n^+ a_n + \sum_{m,n} v_{mn} a_m^+ a_n \tag{1.1}$$

と書いたとき，不規則性は ϵ_n だけにあり，V_{mn} はランダムでなく，結晶格子の周期性をもっていると仮定できる場合にのみ使える方法である。C．P．A とは，１散乱子による散乱の効果が平均的にゼロになるようにグリーン関数を決めるもので，これは各原子準位 ϵ_n の代りに，$(\epsilon_n - v_c)$ とおいて，第ゼロ近似をとるのに等しい。ここで v_c は上記の条件をみたすように決められたポテンシャルで，これを Coherent Potential とよぶ。

具体的には２種の原子によって構成される二元合金（２つの原子間の遷移行列が原子の種類によらないと考えてよい場合）の中の電子の運動，あるいは，同位元素の不純物を含む結晶の格子振動（ばね定数が原子の種類によらない）など，ハミルトニアンが（1.1）式の形に帰結でき，かつ v_{nm} が規則的であれば C．P．A の対象になる。例えば，不純物原子による電子の散乱を，完全結晶中の電子への摂動とみなし，Bloch 波動関数を基底にとって，ハミルトニアンを

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} a_{\mathbf{k}}^+ a_{\mathbf{k}'} \tag{1.2}$$

と書く場合にも，関係式

$$
\left.\begin{aligned}
a_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_n} a_n \\
a_{\mathbf{k}}^{+} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_n} a_n^{+} \\
E_{\mathbf{k}} &\fallingdotseq \frac{1}{N} \sum_{m,n} v_{m,n}\, e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_m-\mathbf{R}_n)} \\
V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} &= \frac{1}{N} \sum_{n} \varepsilon_n\, e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{R}_n}
\end{aligned}\right\} \qquad (1.3)
$$

を使って（1.1）式の形に変換できることは明らかである。[2)]

さて，C．P．A は最初 Soven によって提案され，この名を与えられたのであるが，この近似は同じころ独立に提案された Yonezawa[3)] 及び Leath[4)] の，グラフを使った摂動法の第1近似と完全に一致し，従来のグラフ法との関連が明らかにされた。このグラフの方法は，1散乱子の関与するグラフを全てひろい集め，一体の全グリーン関数を Self－Consistent に決定するものである。その際，各グラフに割り当てる Cumulant な量として，Kinematic Correction を考慮したものを計算するのであるが，余分な補正（Over－Correction）が入らないように近似の範囲内で，つじつまの合うように，この量を決めるのが，この方法の真髄である。この様に，一連のグラフの方法における位置づけもなされた C．P．A はその考え方が直感的で理解し易いこと，スペクトルの計算など Overall な量に対し可成りよい近似になっていること，いくつかの解析的な結果も得られること[5)] などが，種々の問題に広く採用されている由縁である。

スペクトルの計算結果がよいことの例として，Soven 自身が示した1次元の積分された状態の数 N(E) の他に，しばしば，ひき合いに出されるのが，Taylor[6)] の不規則格子の Phonon Spectra の計算である。Taylor は，上記の Soven，Yonezawa，Leath らと時を同じくして，やはり独立に C．P．A．と同じ結果を出している。Taylor の考え方は，根本的には Soven の行き方と同じであるが，同位元素不純物を含む3次元の格子振動の

場合に応用して，2乗振動数スペクトルを計算している。

その結果，Payton と Visscher[7] が計算機実験の結果とし与えた振動数スペクトルのヒストグラムにみられる微細構造が，1散乱子近似の範囲で再現できることを主張している。このスペクトルの微細構造の原因は，重い原子の結晶中に作られた軽い原子によるクラスター（島－Island とよぶ）に起因する局在モードから来ていると，解釈されており，1散乱子近似の範囲で，これらの局在モードが再現されることは，原理的にあり得ないと考えられる。

そこで，我々は，Taylor の計算を追試し，第1近似の範囲では，このような微細構造が現れないことを確かめた。さらに Yonezawa の方法[3) 8)]により近似を高め，2散乱子による効果までとり入れた場合には，微細構造の主たるものが現れ，スペクトルの形は，かなり改良されることを確認したので，ここで簡単に報告する。詳細は別に発表する予定である。[9)]

§2　同位元素不純物を含む場合の格子振動の問題

N個の結晶格子点上に，質量Mの原子が N(1−C) 個，質量 m の原子が NC 個，全くランダムに配置されているときのハミルトニアンは，次式で与えられる。

$$\mathcal{H} = \frac{M}{2}\Big\{ \sum_{n,i} \dot{u}_i^2(n) - \epsilon \sum_{n,i} \xi_n \dot{u}_i^2(n) \Big\} + \frac{1}{2}\sum_{nn',i,i'} \Phi_{ii'}(n,n')\, u_i(n)\, u_{i'}(n') \tag{2.1}$$

$$\left.\begin{aligned} &\text{ここで}\quad \epsilon = \frac{M-m}{M} \\ &\xi_n = \begin{cases} 1 & \text{格子点 n 上の原子の質量が m のとき} \\ 0 & \text{〃 〃 M のとき} \end{cases} \end{aligned}\right\} \tag{2.2}$$

また，$u_i(n)$ は格子点 n 上の原子の変位の i 成分である。

このハミルトニアンから，グリーン関数が定義され，振動数スペクトルは，平均化されたグリーン関数によって表わされる。平均化したグリーン関数は，

完全結晶のグリーン関数で展開して，次の形で与えられる。

$$\langle G_{kj}(\omega^2)\rangle = \frac{1}{\omega^2-\omega_j^2(\mathbf{k})-\Sigma} \tag{2.3}$$

Σは Self Energy の和であり，Yonezawa の方法に従い，

$$\Sigma = \Sigma_1(\omega^2) + \Sigma_2(\omega^2, \mathbf{k}) + \Sigma_3(\omega^2, \mathbf{k}) + \cdots\cdots \tag{2.4}$$

と書かれる。ここで $\Sigma_1(\omega^2)$ は１散乱子が Explicit に関与するグラフの和で，

$$\Sigma_1(\omega^2) = \frac{\varepsilon\omega^2 C}{1-\frac{1}{N}\sum_{\mathbf{k},j}\langle G_{\mathbf{k},j}(\omega^2)\rangle\{\varepsilon\omega^2-\Sigma_1(\omega^2)\}} \tag{2.5}$$

と書かれる。Self Energy として，$\Sigma_1(\omega^2)$ のみを含めたものが，C. P. A. と一致する。一方，２散乱子が Explicit に関与するグラフを集めた $\Sigma_2(\omega^2;\mathbf{k})$ は

$$\begin{aligned}\Sigma_2(\omega^2,\mathbf{k}) = {} & \varepsilon\omega^2\sum_{\mathbf{R}\neq 0}\sum_{r=1}^{\infty}\left[\alpha(\omega^2,\mathbf{R})\,\alpha(\omega^2,-\mathbf{R})\right]^r \\ & \times\left[\alpha(\omega^2,\mathbf{R})\,\alpha(\omega^2,-\mathbf{R})\,D_r(\alpha(\omega^2,0);C)\,D_{r+1}(\alpha(\omega^2,0);C)\right. \\ & \left. + e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}}\alpha(\omega^2,\mathbf{R})\{D_r(\alpha(\omega^2,0);C)\}^2\right]\end{aligned} \tag{2.6}$$

で与えられる。ここで

$$\left.\begin{aligned}\alpha(\omega^2,\mathbf{R}) &= \frac{\varepsilon\omega^2}{N}\sum_{\mathbf{R}} G(\omega^2,\mathbf{R})\,e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} \\ D_n(x;C) &= \frac{1}{n!}\frac{\partial^n}{\partial x^n}I(x;c)\end{aligned}\right\} \tag{2.7}$$

であり，$I(x;c)$ は

$$I(x;c) = \frac{c}{1-x(1-I(x;c))} \tag{2.8}$$

である。

我々は単純立方格子の場合に，(2.5) 式の $\Sigma_1(\omega^2)$，及び (2.6) 式の $\Sigma_2(\omega^2, \mathbf{k})$ まで含めたグリーン関数を計算し，格子振動の2乗振動数スペクトルを計算した。

まず，$\Sigma_1(\omega^2)$ まで含めた近似は，先にも述べたように C. P. A. になり，Taylor の近似と一致する。第1図 (a)，(b)，(c)，(d) に我々の結果（実線）と Taylor の結果（点線）を比較して示す。背景のヒストグラムは Payton−Visscher の計算機実験の結果である。第1図から明らかなように，第1近似の範囲内では，Taylor の論文で主張されているような微細構造はみられない。

一方第2図に，我々が計算した第1近似によるもの（点線）と (2.6) 式まで含めた場合のスペクトル（実線）を示した。背景のヒストグラムは第1図と同様に Payton−Visscher によるものである。この図は C. P. A. があまりよい近似でない低濃度の場合である。C. P. A. よりは次の点が改良されている。

1) C. P. A. では全くみられなかった2散乱子による局在モードが少しは現われ，Payton−Visscher のものと一致するような傾向をみせている。

2) C. P. A. の場合，低度が低くなった場合，1散乱子による局在モードが Shape に現われないのに対し，今度は，それに相当するでこぼこの構造が現われた。

3) Tail が現われた。

不純物濃度が低くなれば，局在モードが，著るしく現われなければならないが，C. P. A. では，その傾向が全くみられないのに対し，$\Sigma_2(\omega^2, \mathbf{k})$ までとり入れた近似では，少しはその傾向がみられるようになった。

References

1) P. Soven, Phys. Rev. 156, 809 (1967)

2) F. Yonezawa, Progr. Theor. Phys. 31, 357 (1964)
P. L. Leath, Preprint

T.Matsubara, to be publrshed
3) F.Yonezawa, Progr. Theor. Phys. 40, 734 (1968)
4) P.L.Leath, Phys. Rev. 171, 729 (1968)
5) H.Hasegawa & F.Yonezawa, J.Phys. Soc. Japan (Supplement) 26, 74 (1969)
6) D.W.Taylor, Phys. Rev. 156, 1017 (1967)
7) D.N.Payton & W.M.Visscher, Phys. Rev. 154, 802(1967)
8) 米沢・本間，物性研究
F.Yonezawa & M.Nakamura, to be published,
9) M.Nakamura & F.Yonezawa, to be published.

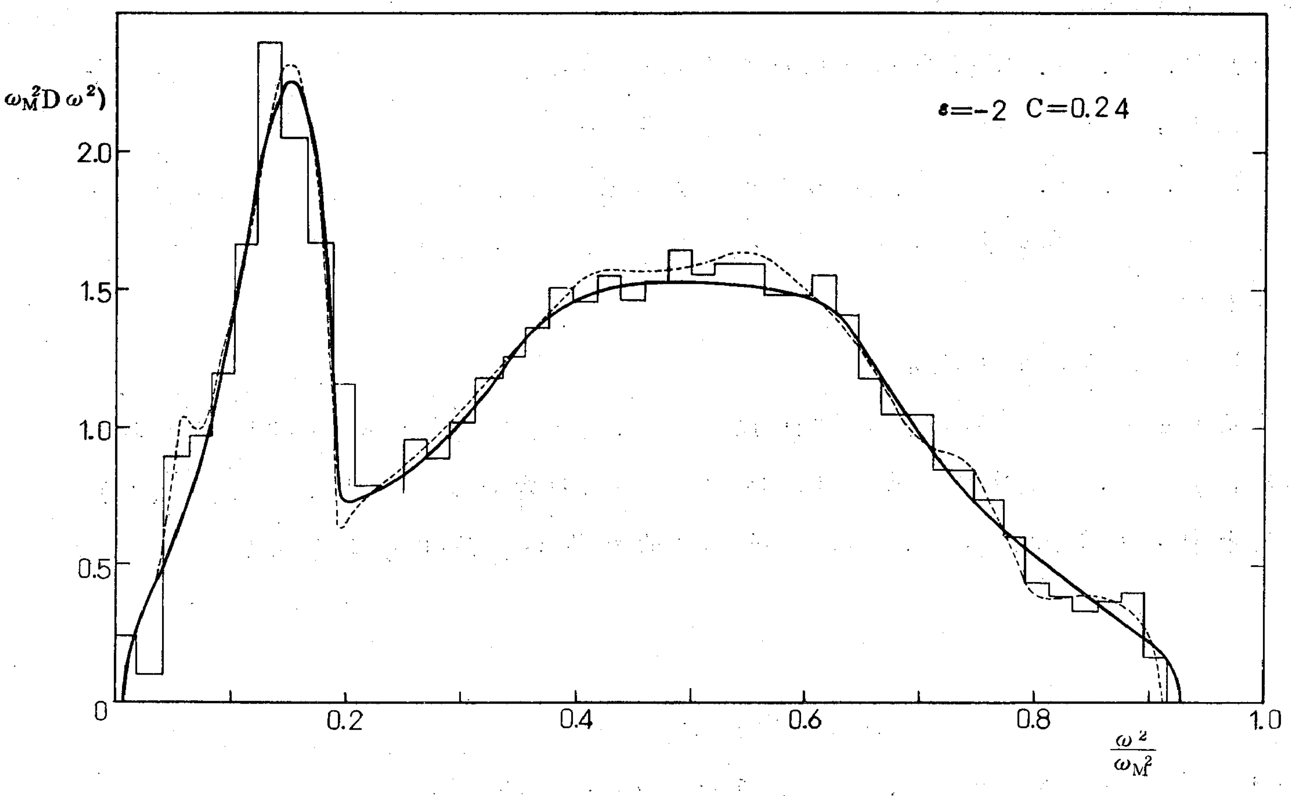

Figure 1 (a)

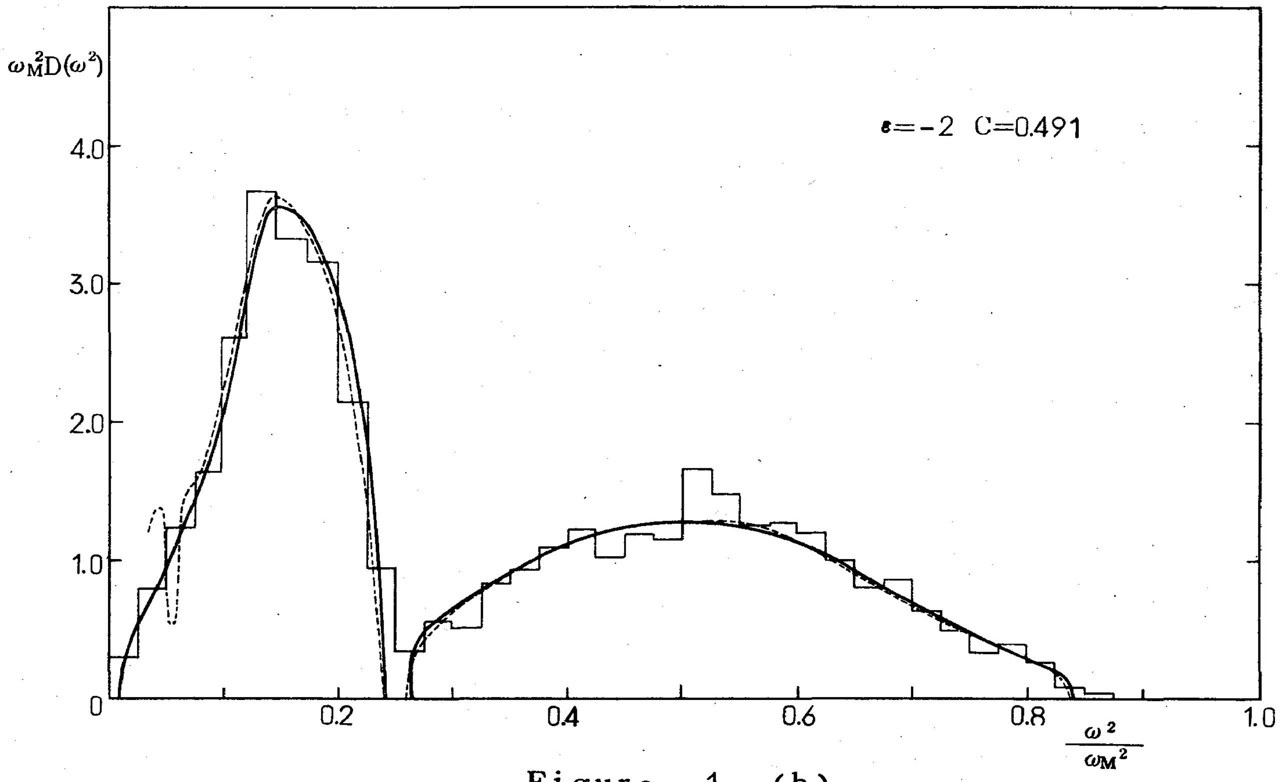

Figure 1 (b)

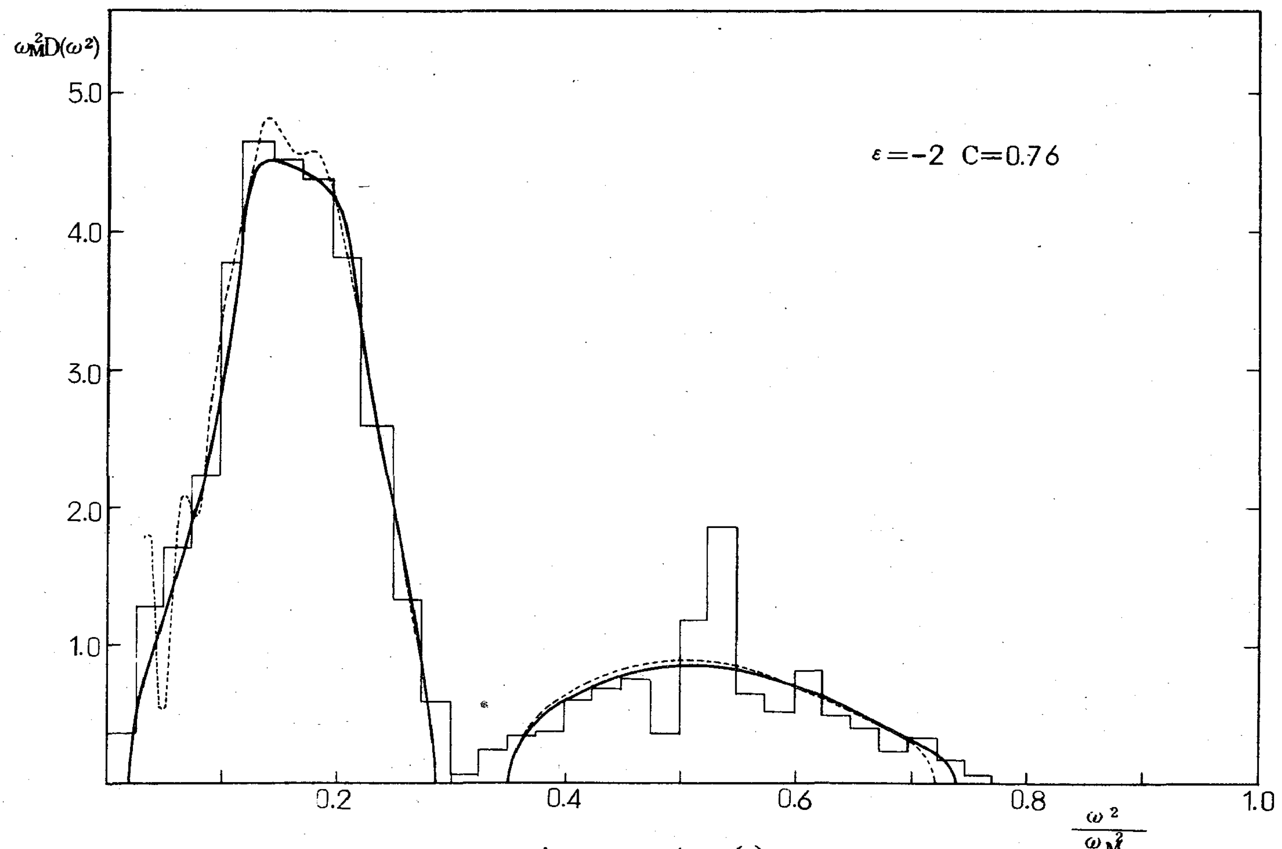

Figure 1 (c)

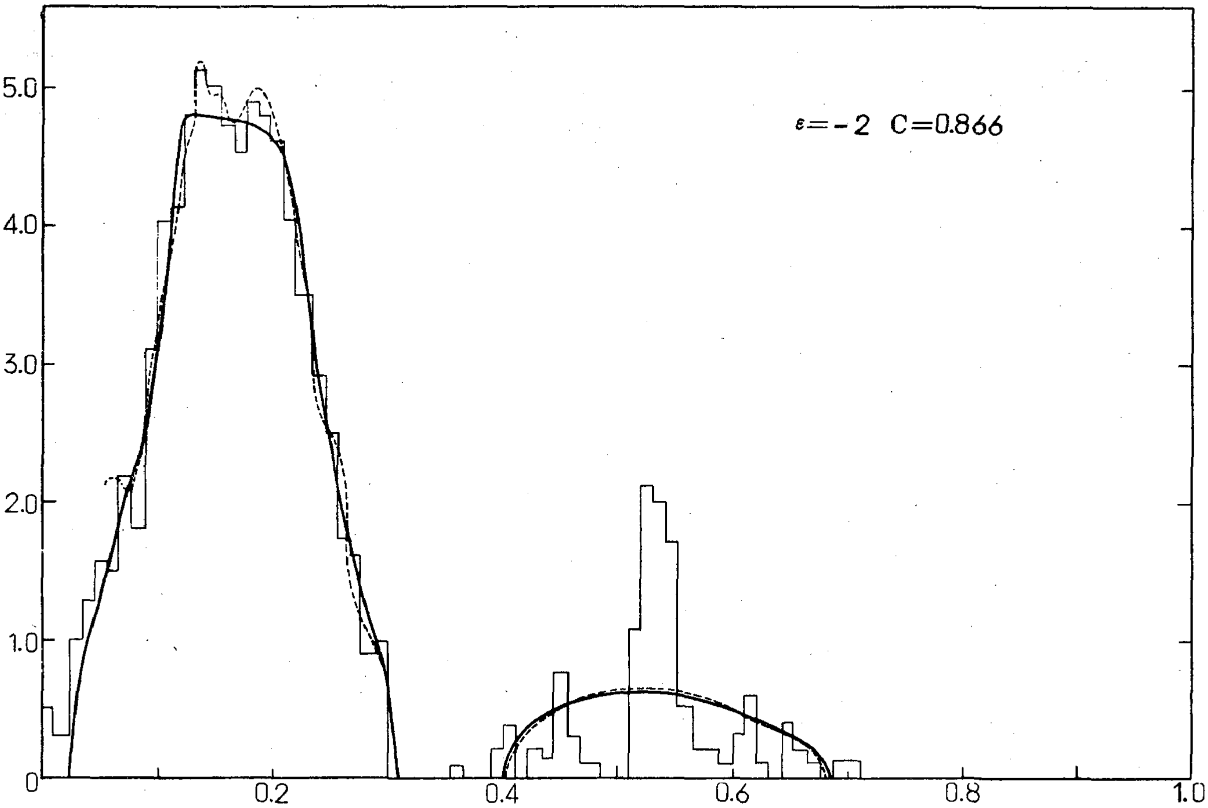

Figure 1 (d)

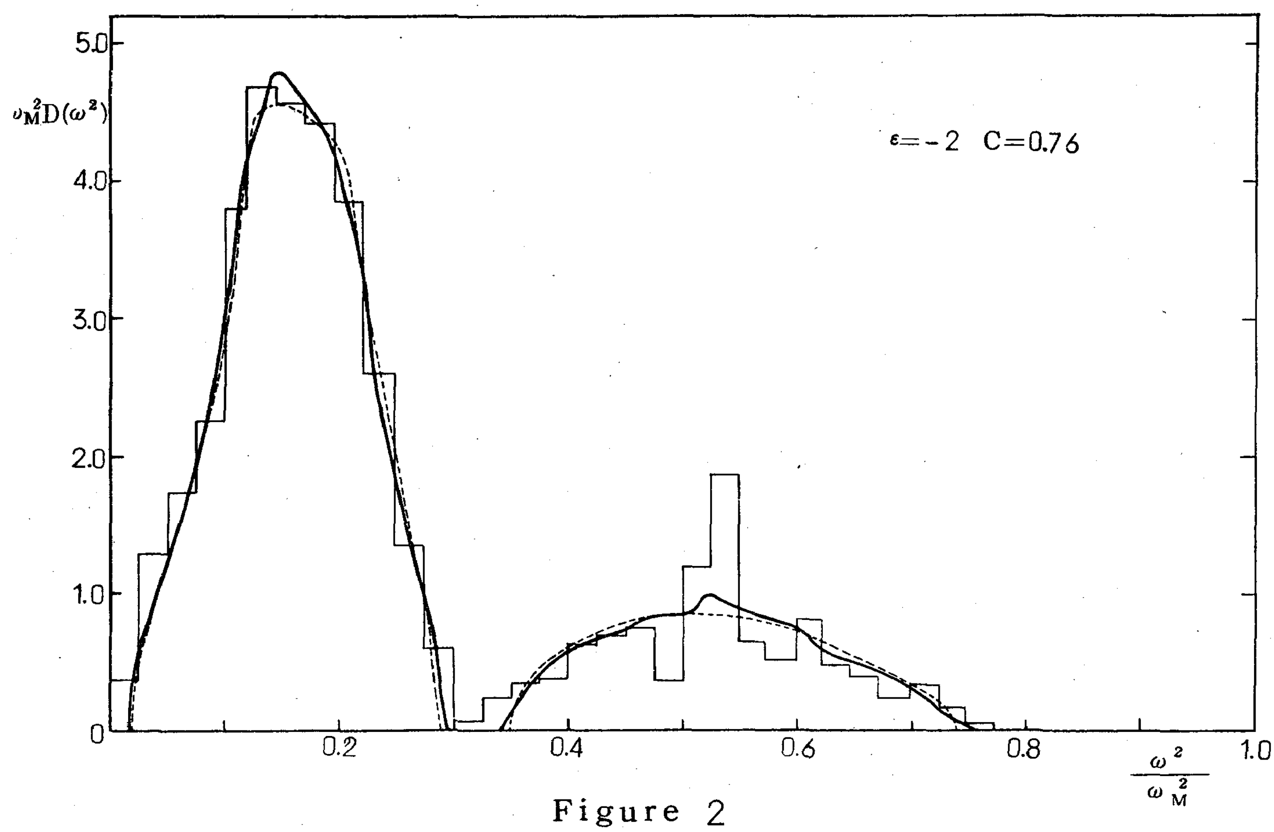

Figure 2